

J.W. Price 949/261.8433  
HIROSHI NISHIZATO et.al.  
FUJ2-BM12

日 本 国 特 許 庁

PATENT OFFICE  
JAPANESE GOVERNMENT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日

Date of Application:

2000年 7月26日

出 願 番 号

Application Number:

特願2000-225445

出 願 人

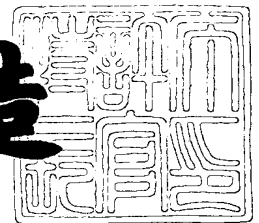
Applicant (s):

株式会社エステック

2000年 8月25日

特 許 庁 長 官  
Commissioner,  
Patent Office

及 川 耕 造



出証番号 出証特2000-3067740

【書類名】 特許願

【整理番号】 T4237PR

【あて先】 特許庁長官殿

【発明者】

    【住所又は居所】 京都府京都市南区上鳥羽鉾立町 1 1 番 5 株式会社エス  
                        テック内

    【氏名】 西里 洋

【発明者】

    【住所又は居所】 京都府京都市南区上鳥羽鉾立町 1 1 番 5 株式会社エス  
                        テック内

    【氏名】 宮本 英顕

【特許出願人】

    【識別番号】 000127961

    【氏名又は名称】 株式会社エステック

【代理人】

    【識別番号】 100074273

    【弁理士】

    【氏名又は名称】 藤本 英夫

    【電話番号】 06-6352-5169

【先の出願に基づく優先権主張】

    【出願番号】 平成11年特許願第260819号

    【出願日】 平成11年 9月14日

【手数料の表示】

    【予納台帳番号】 017798

    【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

    【物件名】 明細書 1

    【物件名】 図面 1

    【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9718150

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 液体材料気化方法および装置

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 液体材料とキャリアガスとを、液体流量制御機能を備えた制御バルブ内の気液混合部において流量制御しながら混合し、このときの気液混合体を流量制御部の近傍に形成されたノズル部から放出して液体材料を減圧気化させるようにしたことを特徴とする液体材料気化方法。

【請求項 2】 液体流量制御機能を備えた制御バルブに、液体材料を収容した原料タンクおよびこの原料タンクからの液体材料の流量を計測する液体用流量計を備えた液体材料供給ラインと、キャリアガス供給源およびキャリアガスの流量を制御する気体用流量制御装置を備えたキャリアガス供給ラインとを互いに独立して接続する一方、前記制御バルブ内に気液混合部およびノズル部を互いに近接して形成し、前記液体材料供給ラインによって制御バルブ内に導入される液体材料を流量制御しながら前記気液混合部においてキャリアガス供給ラインによって制御バルブ内に導入されるキャリアガスと混合し、このときの気液混合体を前記ノズル部から放出して減圧する事により液体材料を気化し、この気化によって生じたガスをキャリアガスとともに前記ノズル部の下流側のガス導出路から取り出すようにしたことを特徴とする液体材料気化装置。

【請求項 3】 制御バルブにおける液体材料の流量制御を、液体用流量計の出力またはガス導出ラインに設けられた気体用流量計の出力に基づいて行うようにしてなる請求項 2 に記載の液体材料気化装置。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】

この発明は、例えば半導体製造において用いるテトラエトキシシランなどの液体材料を気化する方法および装置に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】

従来の液体材料気化装置として、例えば特公平 7 - 8 4 6 6 2 号公報に記載さ

れたように、流量制御機能を備えた制御バルブ内において液体材料を気化するようにしたものがある。図 9 は、この液体材料気化装置の主要部を示す図で、この図において、70 は流量制御機能を備えた制御バルブで、その弁本体 71 内には、上部に開口した凹部 72 が形成されている。そして、73 は凹部 72 を閉塞するように設けられる駆動部で、凹部 72 内で昇降するプランジャ 74 を備えている。また、75 は弁本体 71 の底面中央から上方に突出した突部 76 の上部に形成された弁シートである。さらに、77 は可撓性のダイヤフラムで、凹部 72 内を、プランジャ 74 を含む上部空間 78 と弁シート 75 を含む下部空間 79 とに機密に区画するとともに、プランジャ 74 の下降により弁シート 75 の上面に密着されるように構成されている。

#### 【0003】

そして、図 9 において、80 は液体材料導入路で、弁本体 71 底面中央から弁シート 75 上面のダイヤフラム 77 が密着する部位まで上下に貫通するように形成されている。また、81 はキャリアガス導入路、82 は混合ガス導出路で、いずれも、ダイヤフラム 77 が弁シート 75 の上面に密着されたとき弁シート 75 の周囲に形成される空間に連通するように形成されている。

#### 【0004】

上記構成の制御バルブ 70 においては、液体材料タンク（図示していない）からの液体材料 83 を流量制御しながら液体材料導入路 80 内を上方に誘導して制御バルブ 70 内に供給するとともに、キャリアガス源（図示していない）からの高温（例えば 70℃）のキャリアガス 84 をキャリアガス導入路 81 を介して制御バルブ 70 内に導入し、前記液体材料 83 を高温のキャリアガス 84 に接触させることにより気化して液体材料 83 を原料ガスとし、この原料ガスをキャリアガス 84 と混合して、この混合ガス 85 を混合ガス導出路 82 を経て制御バルブ 70 外に導出するようにしている。

#### 【0005】

##### 【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記液体材料気化装置においては、キャリアガス 84 の活用効率が悪く、液体材料 83 を効率よくしかも常に安定して気化させることができない

いといった欠点がある。これを、図 1 0 および図 1 1 を参照しながら説明する。

【 0 0 0 6 】

まず、図 1 0 は、弁シート 7 5 の開状態における液体材料 8 3 およびキャリアガス 8 4 の流れを示すもので、キャリアガス導入路 8 1 を経て下部空間 7 9 に導入されたキャリアガス 8 4 は、図中の矢印 8 4 a で示すように、弁シート 7 5 の上面とダイヤフラム 7 7 との間を流れ、液体材料導入路 8 0 内を上方に誘導される液体材料 8 3 に接触するものもあるが、大部分は、図中の矢印 8 4 b で示すように、弁シート 7 5 およびその下方の突部 7 6 を迂回するように流れる。このような流れの結果、導入された高温のキャリアガス 8 4 が液体材料 8 3 の気化促進にそれほど寄与せず、局所的な液体の上記分圧が飽和状態に近い状態となり、そのため結露が生じやすい。

【 0 0 0 7 】

そして、上記液体材料気化装置においては、制御バルブ 7 0 への液体材料 8 3 の導入量が増えると、その気化が安定に行われれないといった不都合がある。すなわち、制御バルブ 7 0 にキャリアガス 8 4 の導入量を一定に保持しながら、液体材料 8 3 の制御バルブ 7 0 への導入量を段階的に増加させていったときの、制御バルブ 7 0 から導出されるガス流量の変化を観察したところ、図 1 1 に示すような結果が得られた。

【 0 0 0 8 】

すなわち、図 1 1 において、符号 a は、キャリアガス 8 4 の導入量を示し、この例では 2 0 0 0 c c / 分である。そして、符号 b は、液体材料（例えばエタノール）8 3 の導入量の変化を示し、この例では、0 . 2 c c / 分から段階的に 1 . 0 c c / 分まで変化させている。また、図中の符号 c は、制御バルブ 7 0 から導出されるガスの流量変化を電圧変化として表したものである。この図 1 1 から、エタノール 8 3 の導入量が比較的少ない間は、ガス流量は安定して変化しているが、前記導入量が増大すると、オーバーシュートが生じたり変動が激しくなることが判る。

【 0 0 0 9 】

この発明は、上述の事柄に留意してなされたもので、その目的は、液体材料の

気化を常に効率よくかつ安定して行わせることができる液体材料気化方法および装置を提供することである。

【0010】

【課題を解決するための手段】

上記目的を達成するため、この発明の液体材料気化方法は、液体材料とキャリアガスとを、液体流量制御機能を備えた制御バルブ内の気液混合部において流量制御しながら混合し、このときの気液混合体を流量制御部の近傍に形成されたノズル部から放出して液体材料を減圧気化させるようにしている（請求項1）。

【0011】

そして、この発明では、上記液体材料気化方法をより具体的に実施するための装置として、液体流量制御機能を備えた制御バルブに、液体材料を収容した原料タンクおよびこの原料タンクからの液体材料の流量を計測する液体用流量計を備えた液体材料供給ラインと、キャリアガス供給源およびキャリアガスの流量を制御する気体用流量制御装置を備えたキャリアガス供給ラインとを互いに独立して接続する一方、前記制御バルブ内に気液混合部およびノズル部を互いに近接して形成し、前記液体材料供給ラインによって制御バルブ内に導入される液体材料を流量制御しながら前記気液混合部においてキャリアガス供給ラインによって制御バルブ内に導入されるキャリアガスと混合し、このときの気液混合体を前記ノズル部から放出して液体材料を減圧気化し、この気化によって生じたガスをキャリアガスとともに前記ノズル部の下流側のガス導出路から取り出すようにしたものをを用いている（請求項2）。

【0012】

上記制御バルブにおける液体材料の流量制御は、液体用流量計の出力またはガス導出路に連なるガス導出ラインに設けられた気体用流量計の出力に基づいて行うようにすればよい（請求項3）。

【0013】

この発明においては、液体材料とキャリアガスとを、液体流量制御機能を備えた制御バルブ内の気液混合部において流量制御しながら混合し、この気液混合体をノズル部で瞬間的に減圧し、液体材料を効率よくしかも安定した状態で気化す

ることができる。

【 0 0 1 4 】

【発明の実施の形態】

この発明の実施の形態を、図面を参照しながら説明する。図 1 は、この発明の液体材料気化装置の全体構成を概略的に示すもので、この図において、1 は液体流量制御機能を備えた制御バルブ（その構成は、後で詳しく説明する）で、例えば、その左側面部には、液体材料供給ライン 2 が接続され、右側面部にはキャリアガス供給ライン 3 が接続され、下側面部には、ガス導出ライン 4 が接続されている。

【 0 0 1 5 】

前記液体材料供給ライン 2 は、次のように構成されている。すなわち、5 は液体材料供給ライン 2 に設けられる原料タンクで、その内部には液体材料 LM が気密に収容され、その上流側には、レギュレータ 6 を有する不活性ガス供給管 7 が接続されている。そして、 $N_2$ 、He、Ar などの不活性ガスが原料タンク 5 内の上部空間に図中の IN より供給されることにより、液体材料 LM が液体材料供給ライン 2 に押し出されるように構成されている。8 は開閉弁 9 を介して原料タンク 5 の下流側に設けられる液体用流量計で、原料タンク 5 側から流れてくる液体材料 LM の流量を計測するものである。この液体用流量計 8 として例えば公知の液体マスフローメータを用いることができる。そして、この液体用流量計 8 の検出結果は、装置全体を制御したり、検出信号などに基づいて演算を行う装置制御部 10 に送出される。なお、11 は液体用流量計 8 と制御バルブ 1 との間に介装される開閉弁である。

【 0 0 1 6 】

前記キャリアガス供給ライン 3 は、次のように構成されている。すなわち、12 はキャリアガス供給ライン 3 の上流側に設けられるキャリアガス供給源で、 $N_2$ 、He、Ar などの不活性ガスのいずれかをキャリアガス CG として供給するもので、その下流側には、開閉弁 13 を介してレギュレータ 14 が設けられ、さらに、開閉弁 15 を介して気体用流量制御装置 16 が設けられている。この気体用流量制御装置 16 は、制御バルブ 1 に対して供給されるキャリアガス CG が一



定量になるように制御するもので、装置制御部 1 0 からの制御信号に基づいて開度が調節される。この気体用流量制御装置 1 6 として例えば公知の気体マスフローコントローラを用いることができる。なお、1 7 は気体用流量制御装置 1 6 と制御バルブ 1 との間に介装される開閉弁である。

#### 【 0 0 1 7 】

前記ガス導出ライン 4 は、次のように構成されている。1 8 はガス導出ライン 4 に介装される気体用流量計で、制御バルブ 1 からのガス（後述するように、液体材料 LM が気化して生じたガスとキャリアガス CG との混合ガス）の流量を計測するもので、その計測結果は装置制御部 1 0 に送られる。この気体用流量計 1 8 として例えば公知のガスマスフローメータを用いることができる。そして、この気体用流量計 1 8 の下流側には、開閉弁 1 9 を介してユースポイントとしての反応炉 2 0 が設けられている。この反応炉 2 0 は、例えば CVD 装置などの半導体製造装置である。2 1 は反応炉 2 0 に接続される吸引ポンプである。

#### 【 0 0 1 8 】

次に、前記制御バルブ 1 について、図 2 ～ 図 5 を参照しながら説明する。まず、図 2 において、2 2 は例えば直方体形状の本体ブロックで、ステンレス鋼などのように耐熱性および耐腐食性に富む素材よりなる。この本体ブロック 2 2 の内部には、3 つの流路 2 3, 2 4, 2 5 が形成されている。

#### 【 0 0 1 9 】

前記流路 2 3 は、液体材料 LM を後述する気液混合部 3 9 に導入するもので、この液体材料導入路 2 3 は、その一端が本体ブロック 2 2 の左側面に開口し、他端が本体ブロック 2 2 の上面に開口するよう、逆 L 字型を呈している。そして、流路 2 4 は、キャリアガス CG を気液混合部 3 9 に導入するもので、このキャリアガス導入路 2 4 は、その一端が本体ブロック 2 2 の右側面に開口し、他端が本体ブロック 2 2 の上面に開口するよう、L 字型を呈している。また、流路 2 5 は、ガス導出路として機能するもので、このガス導出路 2 5 は、その一端が本体ブロック 2 2 の下面に開口し、他端が本体ブロック 2 2 の適宜位置までほぼ一直線に形成され、その上端側は後述するノズル部 4 2 を介して気液混合部 3 9 に連なっている。

## 【 0 0 2 0 】

さらに、26は本体ブロック22全体を加熱するヒータで、例えばカートリッジヒータよりなり、ガス導出路25の近傍に着脱自在に内蔵されている。27は本体ブロック22の温度を検出する温度センサとしての熱電対である。

## 【 0 0 2 1 】

そして、28、29は本体ブロック22の左右の側面にシール部材30を介して着脱自在に設けられる接続ブロックで、各ブロック28、29には、液体材料導入路23、キャリアガス導入路24とそれぞれ連通する流路28a、29aが形成されており、液体材料導入路23、キャリアガス導入路24のそれぞれがブロック28、29を介して外部の液体材料供給ライン2、キャリアガス供給ライン3と接続されるようになっている。なお、図2においては、ガス導出路25と外部のガス導出ライン4との接続構造については示していないが、適宜の接続部材を用いて所定の接続が行われることはいうまでもない。

## 【 0 0 2 2 】

次に、上記本体ブロック22の上面における構成を、図2～図4を参照しながら説明する。図2において、31は弁ブロックで、本体ブロック22の上面22aにOリング32を介して載置され、例えばステンレス鋼などのように熱伝導性および耐腐食性の良好な素材からなる。この弁ブロック31と前記上面22aとの間に、液体流量制御機能を有するバルブ本体33が形成される。すなわち、弁ブロック31の内部空間34に、ダイヤフラム35がばね36によって常時上方に付勢されるようにして設けられている。

## 【 0 0 2 3 】

ここで、前記本体ブロック22の上面22aにおける構成を、図3および図5を参照しながら説明すると、37は前記上面22aのほぼ中央部に形成されるバルブシートで、二つの環状の隔壁37a、37bよりなり、ダイヤフラム35とともにバルブ本体33を構成するものである。そして、両バルブシート37a、37bによって囲まれた平面視環状の凹部38は、液体材料導入路23の下流側の開口23aを含むように形成され、液流路として機能する。

## 【 0 0 2 4 】

また、内側のバルブシート 3 7 a によって囲まれた平面視円形の凹部 3 9 には、図 5 に示すように、その直径上にキャリアガス導入路 2 4 の下流側の開口 2 4 a と、ガス導出路 2 5 への孔 4 0 とが開設されるとともに、これらの開口 2 4 a および孔 4 0 を含む浅い細長い溝 4 1 が形成されており、開口 2 4 a から流入するキャリアガス C G と、内側のバルブシート 3 7 a とダイヤフラム 3 5 との間の隙間から流入する液体材料 L M とが混合されるように構成され、気液混合部として機能する。

## 【 0 0 2 5 】

そして、4 2 は前記孔 4 0 とガス導出路 2 5 との間に形成されるノズル部で、このノズル部 4 2 は、その直径および長さはかなり小さく、例えば直径は 1. 0 mm 以下、長さは 1. 0 mm 以下である。また、このノズル部 4 2 は、気液混合部 3 9 とできるだけ近接して設ける。そして、このノズル部 4 2 においては、気液混合部 3 9 において生じた気液混合体 M がガス導出路 2 5 に放出され、これにより、気液混合体 M に含まれる液体材料 L M が減圧される事によりガス化され、このガスはキャリアガス C G と混合して混合ガス K G となる。

## 【 0 0 2 6 】

なお、図 3 において、4 3 は外側のバルブシート 3 7 b 外側に形成されるリング溝で、前記リング 3 2 が装填される。

## 【 0 0 2 7 】

そして、前記ダイヤフラム 3 5 は、耐熱性および耐腐食性が良好かつ適当な弾性を有する素材よりなり、図 4 (A), (B) に示すように、軸部 3 5 a の下方にバルブシート 3 7 a の上面と当接または離間する弁部 3 5 b が形成されるとともに、この周囲に薄肉部 3 5 c を備え、さらに、この薄肉部 3 5 c の周囲に厚肉部 3 5 d を備えてなるもので、常時はばね 3 6 によって上方に付勢されることにより、弁部 3 5 b がバルブシート 3 7 a からは離間しているが、軸部 3 5 a に下方向への押圧力が作用すると、弁部 3 5 b がバルブシート 3 7 a と当接する方向に変移するように構成されている。

## 【 0 0 2 8 】

4 4 はダイヤフラム 3 5 を下方に押圧してこれを歪ませるアクチュエータで、

この実施の形態においては、弁ブロック 3 1 の上部に立設されたハウジング 4 5 内に複数の圧電素子を積層してなるピエゾスタック 4 6 を設け、このピエゾスタック 4 6 の下方の押圧部 4 7 をダイヤフラム 3 5 の軸部 3 5 a に当接させたピエゾアクチュエータに構成されている。

## 【 0 0 2 9 】

上述のように構成された液体材料気化装置の動作について説明する。この、不活性ガスを原料タンク 5 に供給すると、原料タンク 5 内の液体材料 LM が加圧され、液体材料 LM は液体材料供給ライン 2 を制御バルブ 1 方向に流れる。この液体材料 LM の流量は、液体流量計 8 で計測され、この計測結果は、装置制御部 1 0 に入力される。そして、前記液体材料 LM は、制御バルブ 1 内に導入される。そして、液体流量設定信号に応じた流量となるように、装置制御部 1 0 から制御信号が制御バルブ 1 に送られる。これにより、ピエゾアクチュエータ 4 4 が動作して、バルブ本体 3 3 の開度を調整する。これにより、制御バルブ 1 内に導入された液体材料 LM は、図 3 に示すように、液体材料導入路 2 3 を経て液流路 3 8 に至り、さらに、図 3 および図 5 に示すように、液流路 3 8 からバルブシート 3 7 a とダイヤフラム 3 5 の弁部 3 5 b との隙間を経て、適宜の温度になっている気液混合部 3 9 に入る。

## 【 0 0 3 0 】

一方、キャリアガス供給源 1 2 からのキャリアガス CG は、気体用流量制御装置 1 6 において流量制御されて制御バルブ 1 方向に送られ、この制御バルブ 1 内の気液混合部 3 9 に送られる。制御バルブ 1 内に導入されたキャリアガス CG は、図 3 に示すように、キャリアガス導入路 2 4 を経て気液混合部 3 9 に入る。

## 【 0 0 3 1 】

前記気液混合部 3 9 に入った液体材料 LM とキャリアガス CG は互いに混合される。特に、気液混合部 3 9 に細長い溝 4 1 が形成されており、液体材料 LM がこの溝 4 1 に流れこみながらキャリアガス CG と混合されるので、両者 LM, CG が十分に混ざり合った気液混合体 M となる。

## 【 0 0 3 2 】

そして、前記気液混合体 M は、気液混合部 3 9 の孔 4 0 を経てノズル部 4 2 か

らガス導出路 2 5 に向けて放出される。このとき、気液混合体 M のなかの液体材料 LM が瞬間的に減圧されてガスとなる。このガスは、気液混合体 M 中のキャリアガス CG と混合し、混合ガス KG となってガス導出路 2 5 を下流側に流れていく。このとき、ガス導出路 2 5 は、ヒータ 2 6 によって加熱されているので、結露が生ずることはない。

## 【 0 0 3 3 】

なお、前記キャリアガス CG は、前記ノズル部 4 2 の手前（上流側）において、圧力が高い状態となり、前記ヒータ 2 6 によって効率良く加熱・昇温されることになる。また、このように、キャリアガス CG 自体の加熱効率が上昇するだけでなく、前記液体材料 LM は、ノズル部 4 2 において強制的にキャリアガス CG と混合されることから、前記キャリアガス CG から液体材料 LM への熱伝達が効率良く行われることになる。これらのことから、前記ヒータ 2 6 から液体材料 LM への熱の伝達効率が上昇するため、液体材料 LM の気化効率があがるとともに、気化した液体材料 LM の流量を大きくし、液体材料 LM を気化させるために必要な温度の低温化、ひいてはエネルギーコストの削減を図ることが可能となる。

## 【 0 0 3 4 】

また、前記気液混合体 M が気液混合部 3 9 からガス導出路 2 5 の下流側に向かう過程において、前記ノズル部 4 2 から放出され、気化した液体材料 LM のガス濃度は、前記キャリアガス CG の存在によって低下することになり、これに伴って、気化した液体材料 LM がガス導出路 2 5 内において液化・結露することを防止するために必要な温度も下がることから、ひいては、ガス導出路 2 5 を加熱するためのエネルギーコストを削減することが可能となる。また、前記液体材料 LM は、ノズル部 4 2 からガス導出路 2 5 へ放出されて気化するときに、断熱膨張することによって熱を失うため、通常は気化効率が低下するが、本実施例においては、液体材料 LM が失った熱を、液体材料 LM と混合するキャリアガス CG によって補うことができ、これにより、液体材料 LM の気化効率の向上が達成できる。

## 【 0 0 3 5 】

そして、前記混合ガス KG は、ガス導出路 2 5 の下流側のガス導出ライン 4 を

経てユースポイントである反応炉 2 0 に供給される。このとき、混合ガス K G の流量は、ガス導出ライン 4 に介装された気体用流量計 1 8 によって計測され、その結果は装置制御部 1 0 に送られる。

## 【 0 0 3 6 】

上述のように、この発明の液体材料気化装置は、液体流量制御機能を備えた制御バルブ 1 内に形成した気液混合部 3 9 において、液体材料 L M を流量制御しながらキャリアガス C G と混合し、このときの気液混合体 M を、気液混合部 3 9 に近接するノズル部 4 2 から放出して液体材料 L M を減圧し気化するようにしているので、良好に混合された状態の気液混合体 M をノズル部 4 2 から放出することができ、気液混合体 M 中の液体材料 L M を効率よくしかも安定した状態で気化し、一定濃度の蒸気を含むガスを安定して供給できる。

## 【 0 0 3 7 】

なお、本発明の液体材料気化装置では、液体材料 L M の反応炉 2 0 までの運送を、高速で流すことが可能なキャリアガス C G にのせる（混合する）ことを行っていることから、液体材料 L M を反応炉 2 0 まで高速で送ることができ、高速応答が要求される場合にも対応することができる。

## 【 0 0 3 8 】

図 6 は、上記液体材料気化装置によって、液体材料 L M をガス化したときに得られた測定データで、制御バルブ 1 にキャリアガス C G の導入量を一定に保持しながら、液体材料 L M の制御バルブ 1 への導入量を段階的に増加させていったときの、制御バルブ 1 から導出される混合ガス K G の変化を観察した結果を表すものである。

## 【 0 0 3 9 】

すなわち、キャリアガス C G を 2 0 0 0 c c / 分とし、液体材料 L M としてエタノールを 1 c c / 分で反応炉 2 0 に供給する場合、制御バルブ 1 のヒータ 2 6 の温度が 8 0 ℃ のとき、ノズル部 4 2 の径を 0 . 3 m m 、長さ 0 . 6 m m とすることにより、気液混合部 3 9 の圧力が 3 0 k p a 程度となる。このとき気液混合部 3 9 における気液混合体 M をノズル部 4 2 から放出して、気液混合体 M 中の液体材料 L M を減圧気化して反応炉 2 0 に供給したときの状態を観察したものであ

る。

#### 【 0 0 4 0 】

この図 6 において、符号 A は、キャリアガス C G の導入量を示し、この例では 2 0 0 0 c c / 分である。そして、符号 B は、液体材料 L M としてのエタノールの導入量の変化を示し、この例では、0 . 2 c c / 分から段階的に 1 . 0 c c / 分まで変化させている。また、図中の符号 C は、制御バルブ 1 から導出される混合ガス K G 流量変化を電圧変化として表したものである。

#### 【 0 0 4 1 】

上記図 6 から、気体用流量計 1 8 の出力 C が、エタノール 0 . 2 c c / 分 ~ 1 . 0 c c / 分の間で安定しており、このことから液体材料 L M の気化が安定して行われていることが判る。つまり、上記構成の液体材料気化装置によれば、従来の気化装置よりも多くの液体材料 L M を安定して気化し、所望のガスを発生させることができる。

#### 【 0 0 4 2 】

そして、上記液体材料気化装置においては、制御バルブ 1 における液体材料 L M の流量制御を、液体用流量計 8 の出力に基づいて行うようにしているので、気液混合部 3 9 に対して液体材料 L M を最適供給することができる。

#### 【 0 0 4 3 】

この発明は、上述の実施の形態に限られるものではなく、種々に変形して実施することができる。すなわち、液体材料導入路 2 3 やキャリアガス導入路 2 4 は、必ずしも鉤形状に形成する必要はなく、ストレートであってもよい。そして、ヒータ 2 6 はプレートヒータであってもよく、ヒータ 2 6 による加熱温度は、液体材料 L M の種類などに応じて適宜設定できる。また、このヒータ 2 6 は、本体ブロック 2 2 の気液混合部 3 9 やガス導出路 2 5 の近傍を加熱できるようにしてあればよく、特に、ノズル部 4 2 から液体材料 L M を放出することにより減圧させガスを好適に生成できる程度にしてあればよい。

#### 【 0 0 4 4 】

そして、制御バルブ 1 における液体材料 L M の流量制御を、ガス導出ライン 4 に設けられた気体用流量計 1 8 の出力に基づいて行うようにしてもよく、このよ

うにした場合、より精度よく液体材料LMの流量を制御することができる。

【0045】

また、アクチュエータ44として、電磁式のものやサーマル式のものを用いてもよい。

【0046】

さらに、液体材料LMは、エタノールに限るものではなく、例えば、ペンタエトキシタンタル（PETa）や、トリメチルホスフェイト（TMPO）などでもよい。また、液体材料LMは、常温常圧で液体状態であるものに限られるものではなく、常温常圧で気体であっても適宜加圧することにより常温で液体となるようなものであってもよい。

【0047】

しかも、反応容器20は真空容器でもよく、この場合ガス導出ライン4は減圧となってもよい。

【0048】

図7は、上記液体材料気化装置によって、液体材料LMとしてのトリメチルホスフェイト（TMPO）をガス化したときに得られた測定データで、キャリアガスCGとしてのN<sub>2</sub>の制御バルブ1への導入量を一定に保持しながら、前記液体材料LMの制御バルブ1への導入量を瞬間的に増加および低下させたときの、制御バルブ1から導出される混合ガスKGの変化を観察した結果を表すものである。

【0049】

すなわち、前記キャリアガスCGを3.0L/分、前記液体材料LMを0.033cc/分で反応炉20に供給する場合であって、制御バルブ1のヒータ26の温度を70℃とし、気液混合部39における気液混合体Mをノズル部42から放出して、気液混合体M中の液体材料LMを減圧気化して反応炉20に供給したときの状態を観察したものである。なお、図7に示す各グラフにおいて、横軸は時間、縦軸は液体用流量計8および気体用流量計18の出力の大きさを表している。

【0050】



前記トリメチルホスフェイト (TMPO) を、従来の液体材料気化装置によって 0.033 cc/分 で流して気化発生させるには、130 度という温度が必要であったが、このような高い温度では TMPO が自己分解し、分解物が制御バルブ 1 に堆積し、詰まるという問題があった。しかし、本発明の液体材料気化装置によれば、TMPO の自己分解がほとんど行われぬ 70 度で、TMPO を 0.033 cc/分 で流して気化発生させることができるのであり、また、このとき、TMPO の流量をゼロから 0.033 cc/分 にまで瞬間的に増加させたときの液体用流量計 8 の出力の変化と、TMPO の流量を 0.033 cc/分 からゼロにまで瞬間的に低下させたときの液体用流量計 8 の出力の変化とに、気体用流量計 18 の出力が追従していることから明らかなように、TMPO の気化は安定して行われている。

## 【0051】

図 8 は、バルブシート 37 付近における TMPO の分解物の付着状態を比較して示す説明図であり、同図 (A) は、従来の液体材料気化装置を用いて、前記キャリアガス CG を 3.0 L/分、前記液体材料 LM を 0.033 cc/分 で 14 時間供給する場合であって、バルブシート付近の温度を 130℃ としたときの結果、同図 (B) は、本発明の液体材料気化装置を用いて、前記キャリアガス CG を 3.0 L/分、前記液体材料 LM を 0.033 cc/分 で 14 時間供給する場合であって、バルブシート 37 付近の温度を 130℃ としたときの結果、同図 (C) は、本発明の液体材料気化装置を用いて、前記キャリアガス CG を 3.0 L/分、前記液体材料 LM を 0.033 cc/分 で 20 時間供給する場合であって、バルブシート 37 付近の温度を 70℃ としたときの結果をそれぞれ示している。

## 【0052】

図 8 (A) および (B) から、温度を 130 度とした場合には、本発明の液体材料気化装置を用いてもバルブシート 37 付近における TMPO の分解物の付着が生じるが、従来の液体材料気化装置を用いた場合に比べ、その付着面積が小さくなるのがわかる。また、図 8 (C) から、本発明の液体材料気化装置を用い、かつ温度を 70 度とした場合には、バルブシート 37 付近における TMPO の

分解物の付着がほとんど生じないことがわかる。

【 0 0 5 3 】

すなわち、本発明の液体材料気化装置によれば、液体を気化させるために必要な加熱温度を下げることができ、高温で分解する液体材料を気化させる場合などであってもその分解を抑えることが可能となる。

【 0 0 5 4 】

【発明の効果】

以上説明したように、この発明においては、液体材料とキャリアガスとを、液体流量制御機能を備えた制御バルブ内の気液混合部において流量制御しながら混合し、この気液混合体をノズル部において減圧するようにしているので、液体材料を効率よくしかも安定した状態で気化することができる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

この発明に係る液体材料気化装置の全体構成を概略的に示す図である。

【図 2】

前記液体材料気化装置における制御バルブの一例を示す縦断面図である。

【図 3】

前記制御バルブにおける要部の構成を示す縦断斜視図である。

【図 4】

前記制御バルブの動作説明図で、（A）はバルブの閉状態を示す図、（B）はバルブの開状態を示す図である。

【図 5】

前記気液混合部の動作説明図である。

【図 6】

前記液体材料気化装置による気化状態を説明するための図である。

【図 7】

前記液体材料気化装置によるトリメチルホスフェイトの気化状態を説明するための図である。

【図 8】

(A)、(B) および (C) は、バルブシート付近におけるトリメチルホスペイトの分解物の付着状態を比較して示す説明図である。

【図 9】

従来の液体材料気化装置の要部を示す縦断面図である。

【図 1 0】

前記従来の液体材料気化装置の動作説明図である。

【図 1 1】

前記従来の液体材料気化装置による気化状態を説明するための図である。

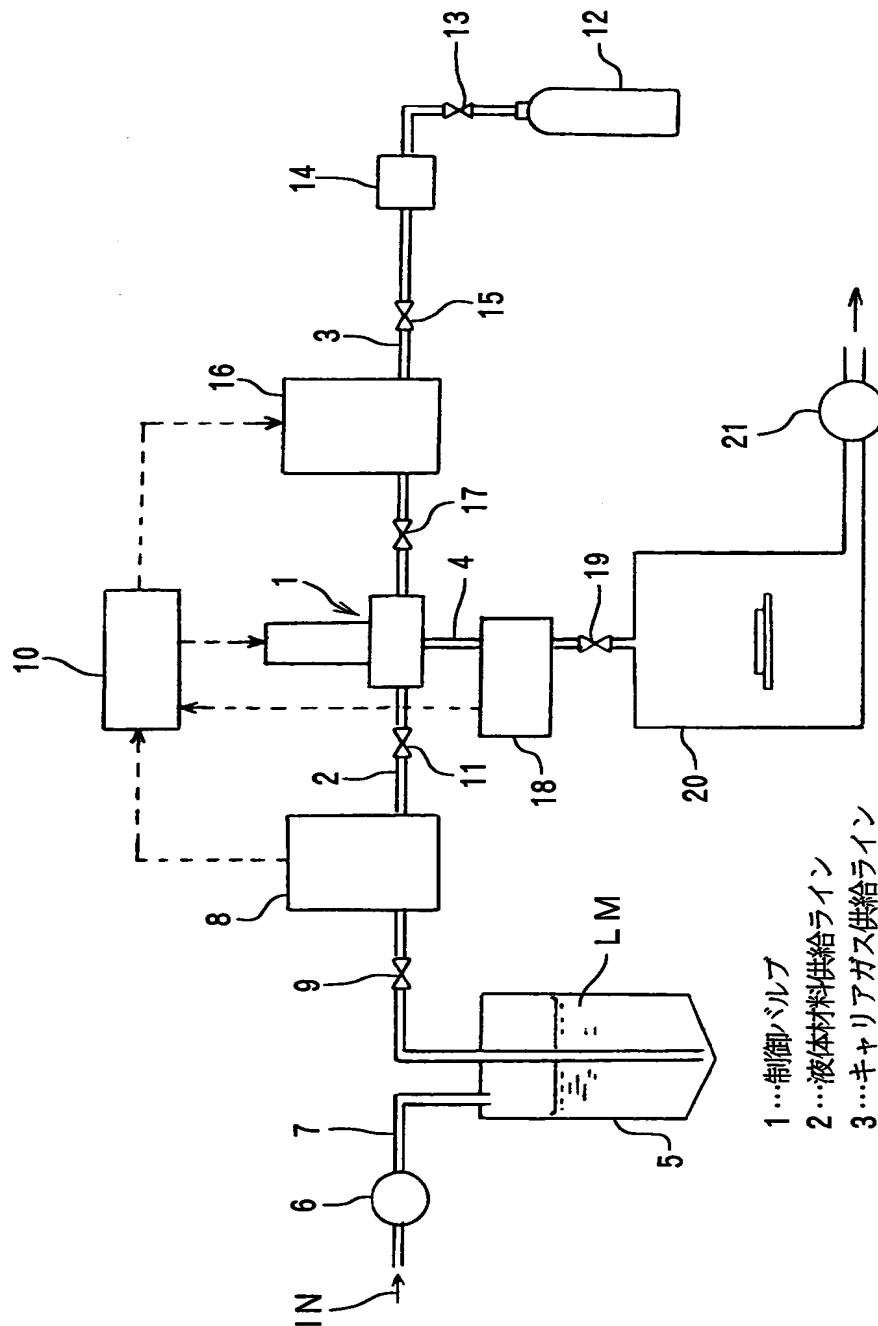
【符号の説明】

1 …制御バルブ、2 …液体材料供給ライン、3 …キャリアガス供給ライン、4 …ガス導出ライン、5 …原料タンク、8 …液体用流量計、12 …キャリアガス供給源、16 …気体用流量制御装置、18 …気体用流量計、25 …ガス導出路、39 …気液混合部、42 …ノズル部、LM …液体材料、CG …キャリアガス、M …気液混合体、KG …混合ガス。

【書類名】

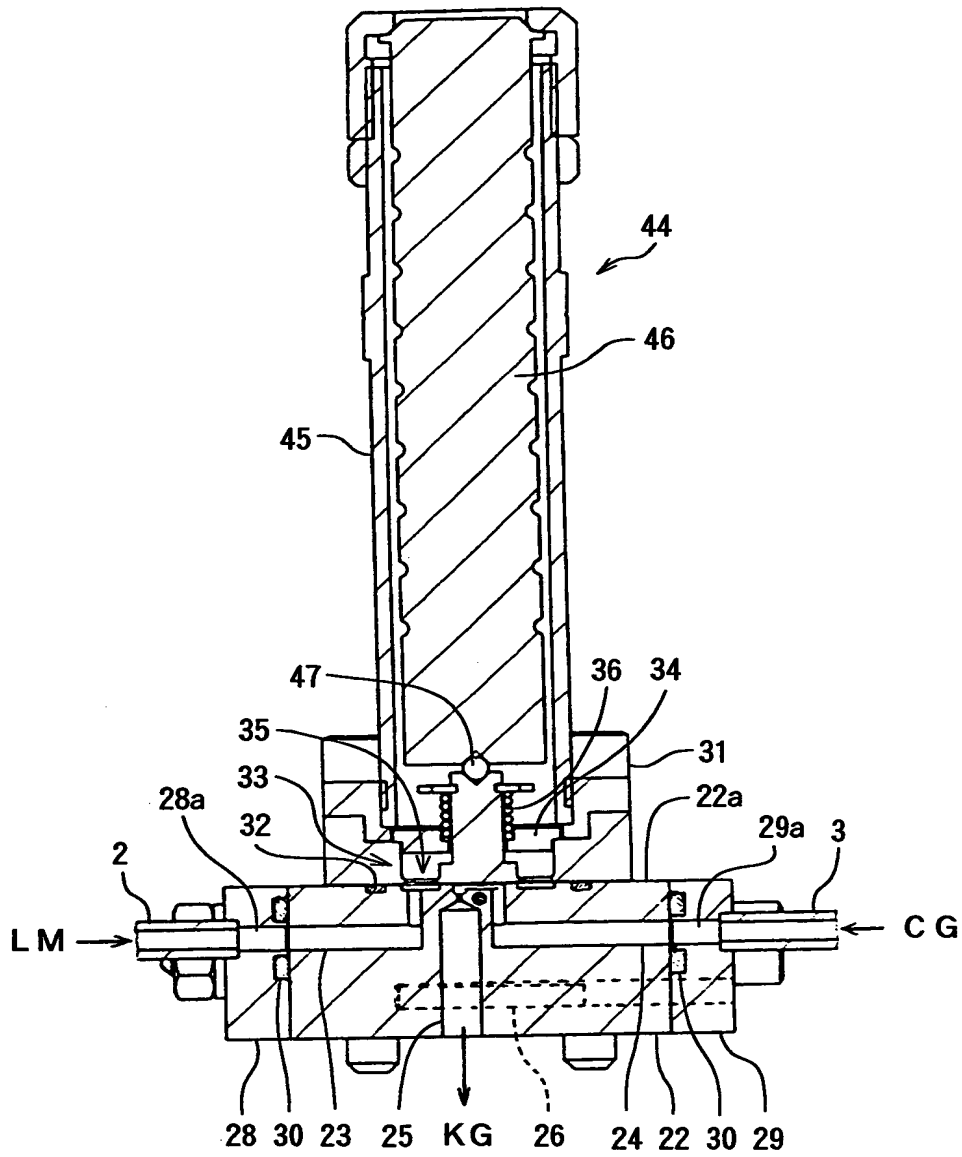
図面

【図 1】

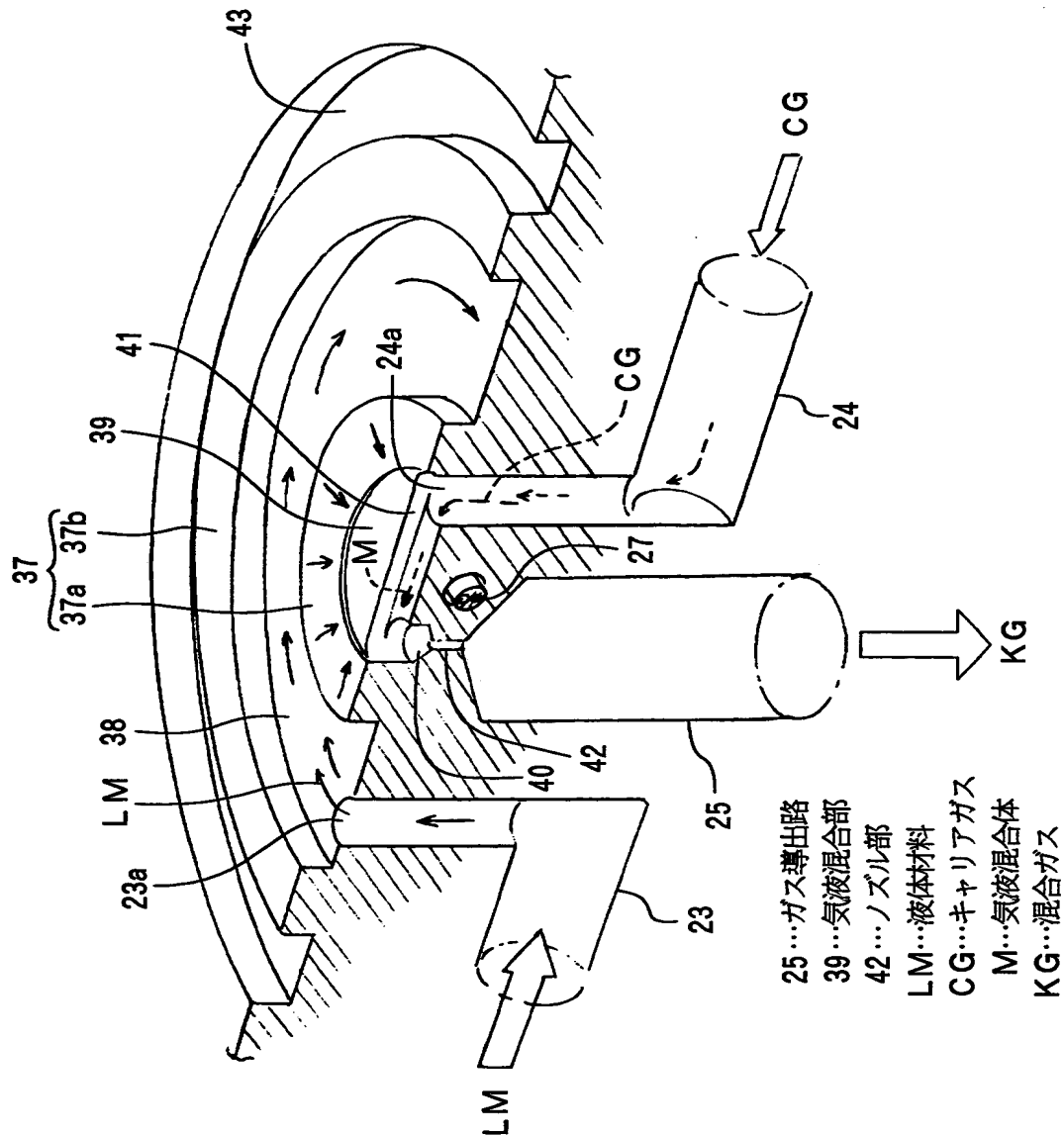


- 1...制御バルブ
- 2...液体材料供給ライン
- 3...キャリアガス供給ライン
- 4...ガス導出ライン
- 5...原料タンク
- 8...液体用流量計
- 12...キャリアガス供給源
- 16...気体用流量制御装置
- 18...気体用流量計

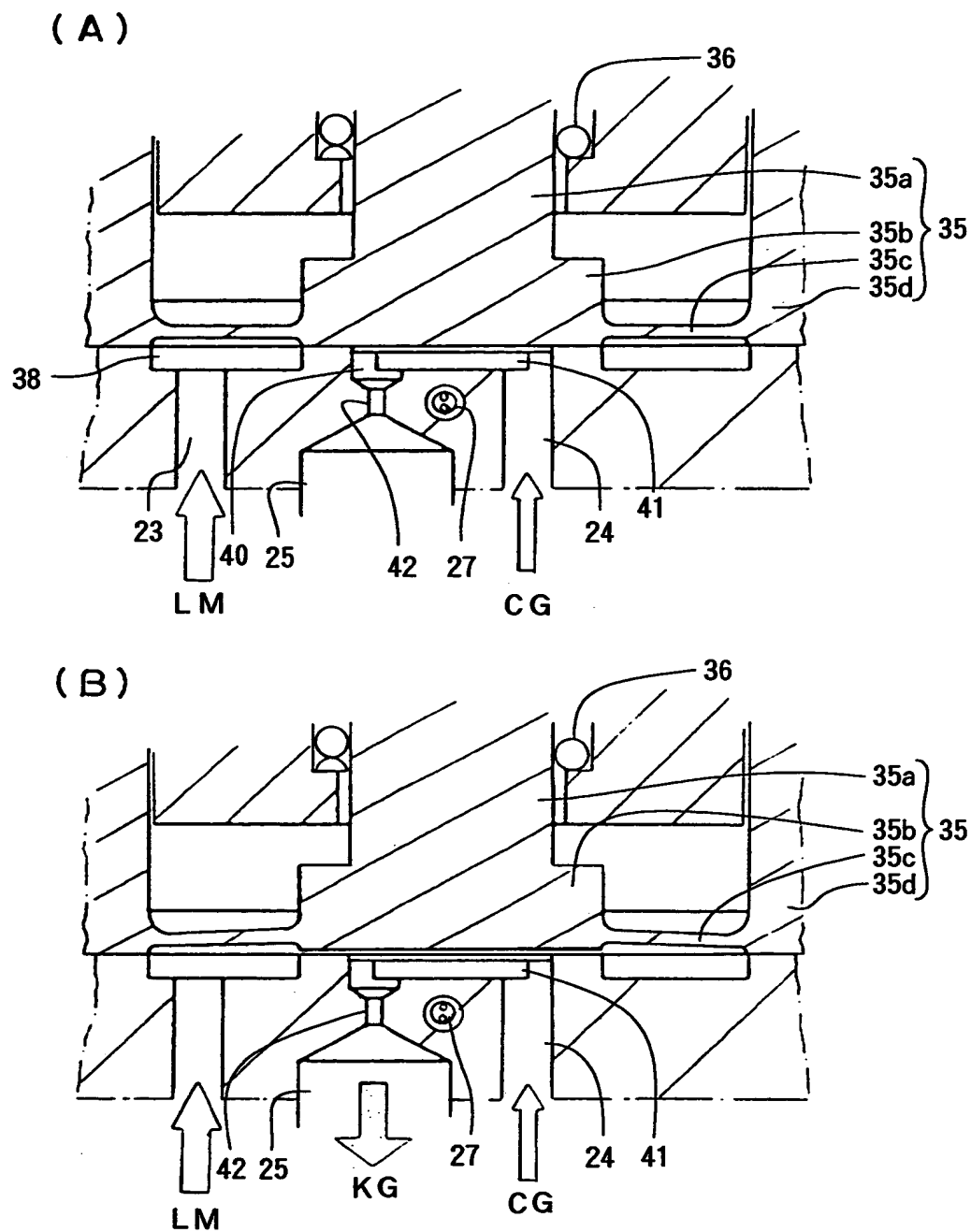
【図2】



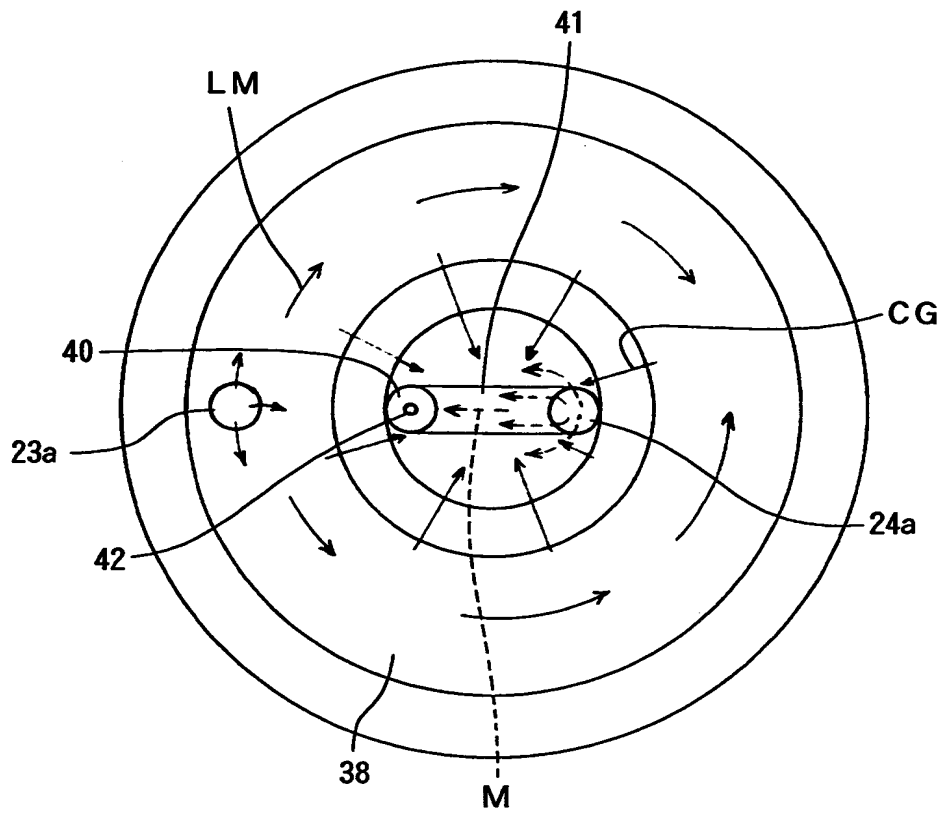
【図 3】



【図 4】

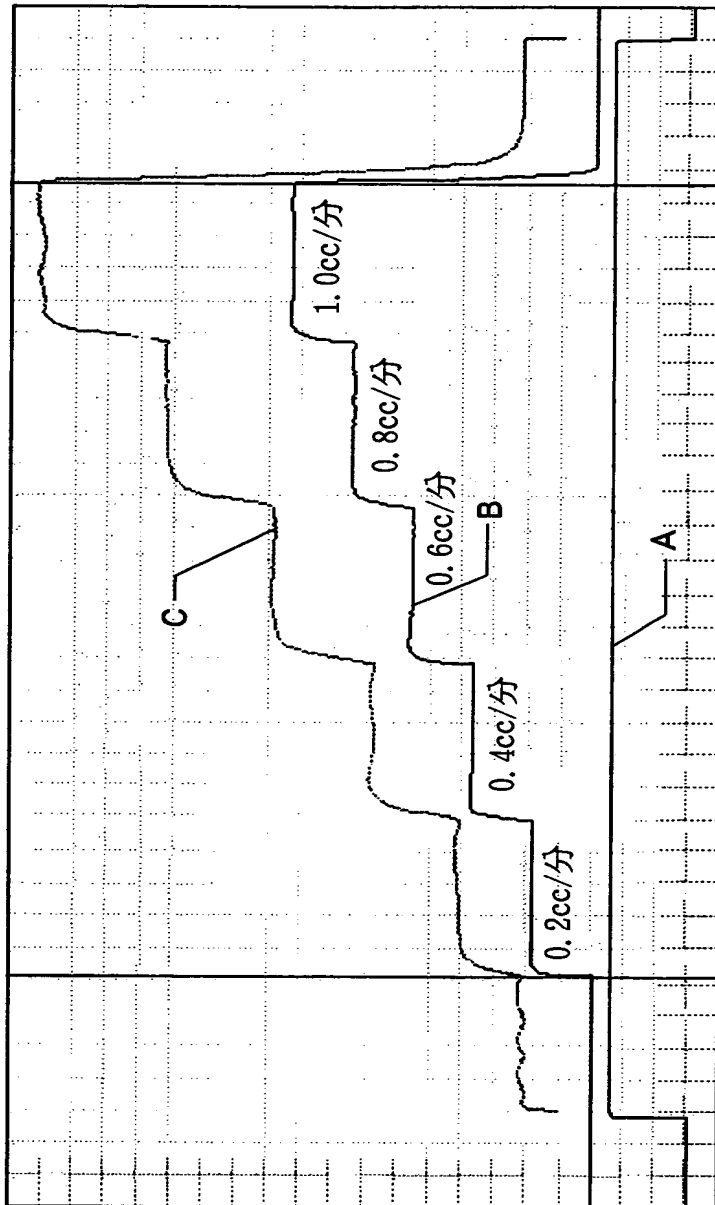


【図 5】



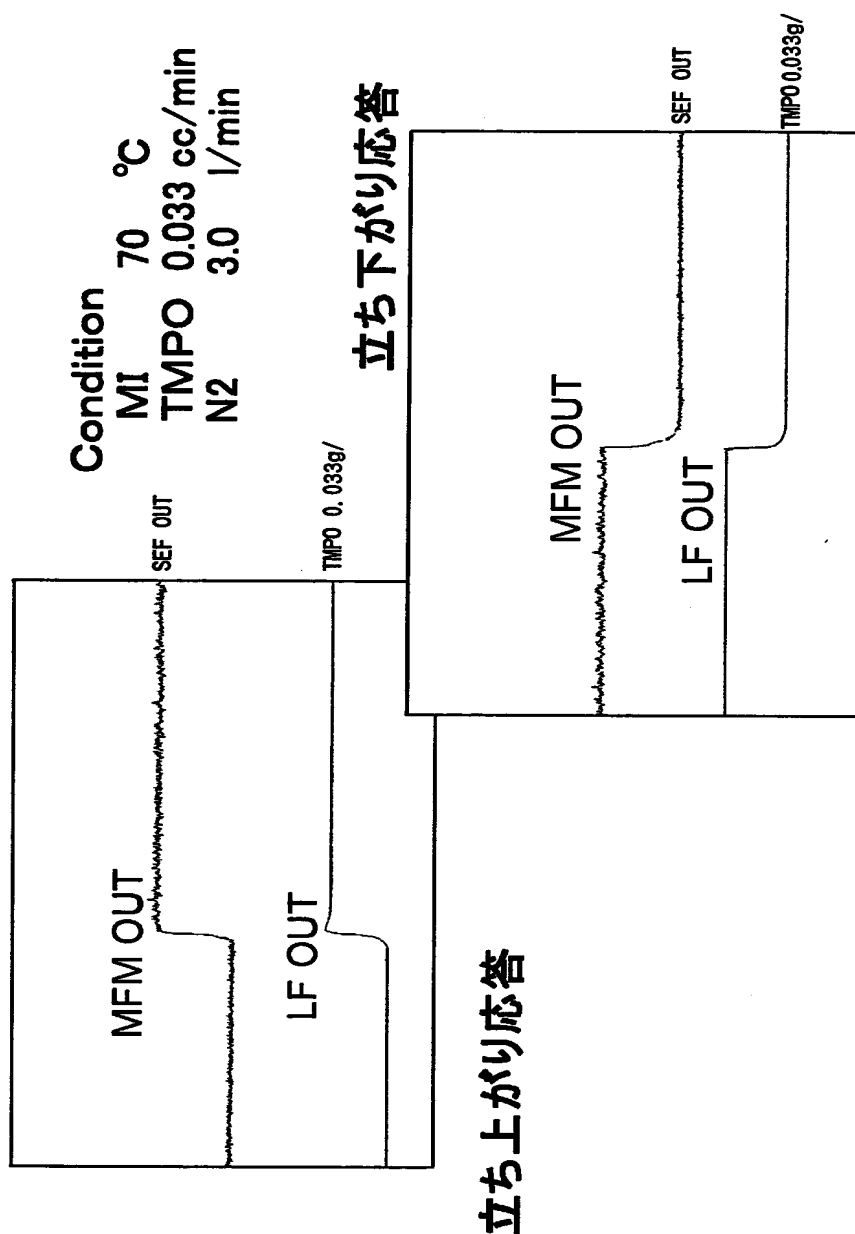


【図6】

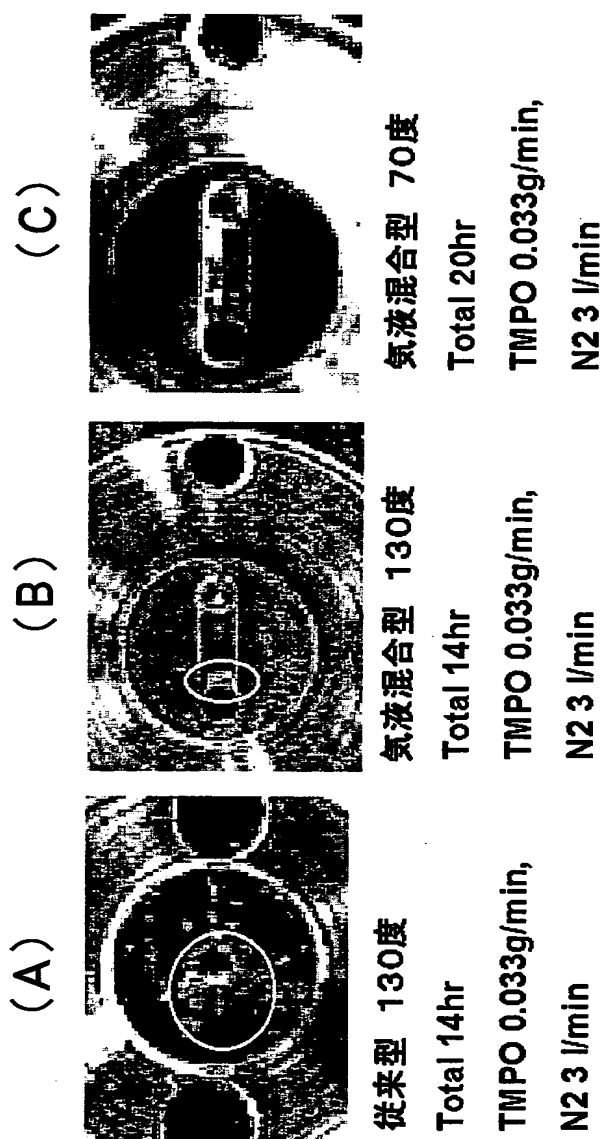


時間 (1日盛 20秒)

【図 7】

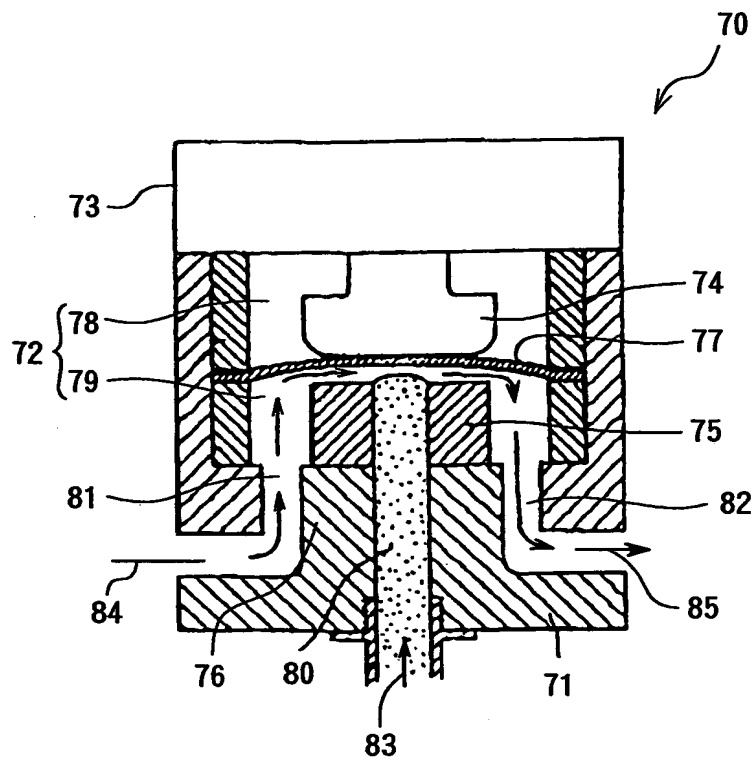


【図 8】

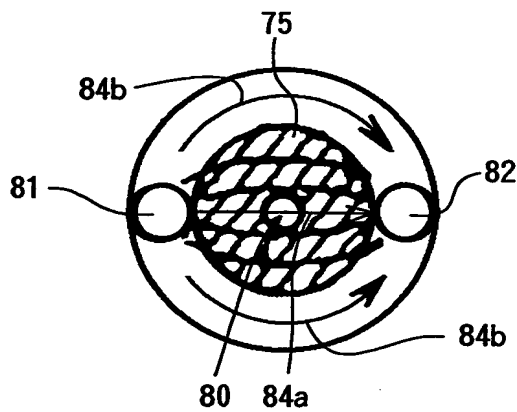


バルブシート面への固形物の残り / O 囲い部分

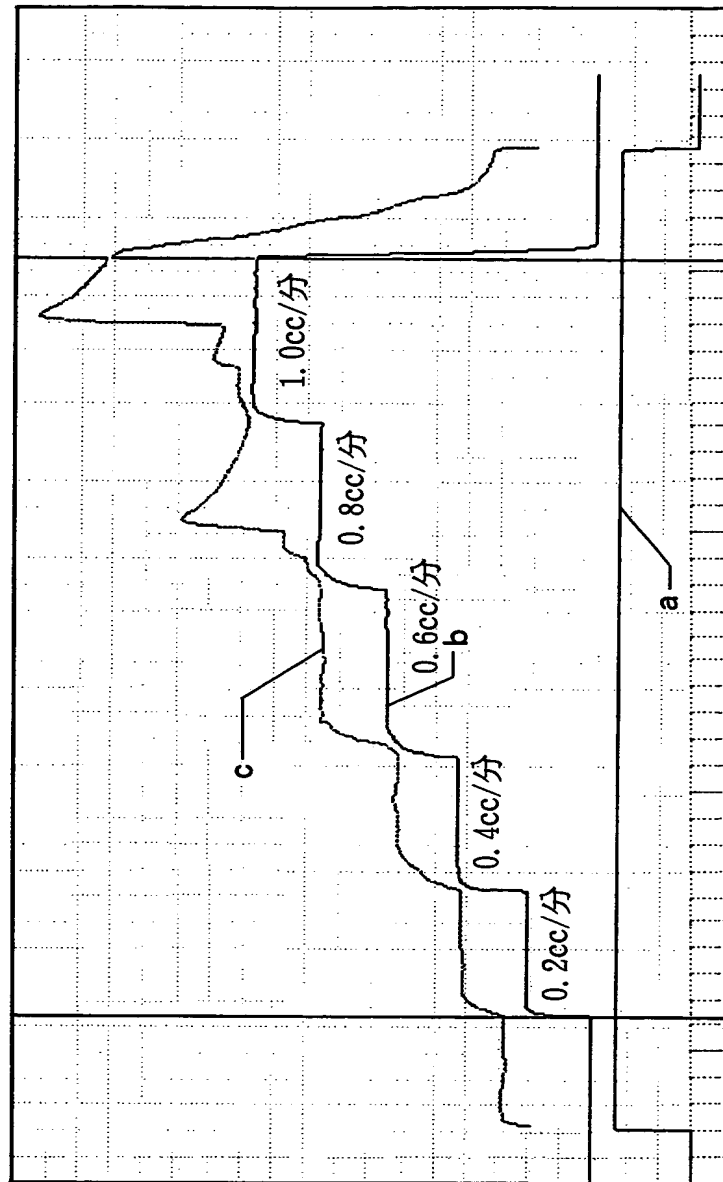
【図 9】



【図 1 0】



【図 11】



時間 (1日盛 20秒)

【書類名】            要約書

【要約】

【課題】    液体材料の気化を常に効率よくかつ安定して行わせることができる液体材料気化方法および装置を提供すること。

【解決手段】    液体材料LMとキャリアガスCGとを、液体流量制御機能を備えた制御バルブ1内の気液混合部39において流量制御しながら混合し、このときの気液混合体Mを流量制御部39の近傍に形成されたノズル部42から放出して液体材料LMを減圧気化させる。

【選択図】            図3

認定・付加情報

特許出願の番号	特願2000-225445
受付番号	50000944553
書類名	特許願
担当官	第八担当上席 0097
作成日	平成12年 7月31日

<認定情報・付加情報>

【提出日】	平成12年 7月26日
-------	-------------

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000127961]

1. 変更年月日 1990年 8月28日

[変更理由] 新規登録

住 所 京都府京都市南区吉祥院宮の東町2番地  
氏 名 株式会社エステック